(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2004年2月19日(19.02.2004)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 2004/015768 A1

(51) 国際特許分類7:

H01L 23/373.

C08K 3/00, C08L 33/08, 53/00, 101/00

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2003/010112

(22) 国際出願日:

2003 年8 月8 日 (08.08.2003)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

JP

Љ

(30) 優先権データ:

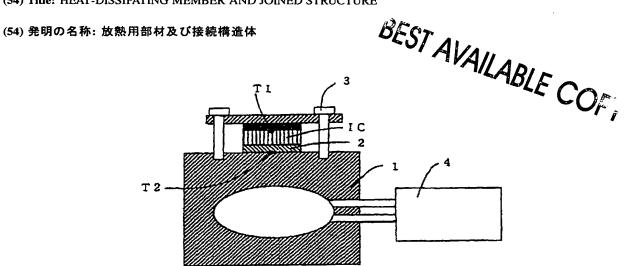
特願2002-233597 2002 年8 月9 日 (09.08.2002) 特願2003-78203 2003年3月20日(20.03,2003)

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 積水化 学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]: 〒530-8565 大阪府 大阪市 北区西天満 2 丁目 4番4号 Osaka (JP).

- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 東 賢一 (AZUMA, Kenichi) [JP/JP]; 〒618-8589 大阪府 三島郡 島本町百山 2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 長谷川 淳 (HASEGAWA, Atsushi) [JP/JP]; 〒 618-8589 大阪府 三島郡 島本町百山 2-1 積水化学工 業株式会社内 Osaka (JP). 俵頭 俊司 (HYODO,Shunji) [JP/JP]; 〒349-0198 埼玉県 蓮田市 大字黒浜3535 積水化学工業株式会社内 Saitama (JP).
- (74) 代理人: 安富 康男 (YASUTOMI, Yasuo); 〒532-0011 大 阪府 大阪市 淀川区西中島 5 丁目 4 番20号 中央ビ ル Osaka (JP).

[続葉有]

(54) Title: HEAT-DISSIPATING MEMBER AND JOINED STRUCTURE



(57) Abstract: A heat-dissipating member has an excellent handling property at room temperature, and is interposed between a heating element and a heat-dissipating element. The heat-dissipating member has such a high flexibility that it tightly adheres to the heating element. Therefore, the heat-dissipating element, heat generated by the heating element is efficiently conducted to the heat-dissipating element and the tight adhesion can be kept even at high temperatures. A joined structure formed by joining the heating element and the heat-dissipating element via the heat-dissipating member is also disclosed. The heat-dissipating member is made of a thermoplastic resin composition which contains a thermoplastic resin and thermally conductive fine particles but does not contain a compound having a melting temperature of 40-80 °C. At 23 °C, the heat-dissipating member has a storage modulus not less than 50,000 Pa at 0.1 Hz and keeps a specific shape. Between 50-80 °C, the storage modulus at 0.1 Hz is between 400-50,000 Pa and the heat-dissipating member has no specific shape. At 100 °C, the storage modulus at 0.1 Hz is not more than 5,000 Pa and the heat-dissipating member has no specific shape.

本発明は、常温においては優れた取り扱い性を有し、発熱体と放熱体との間に介在し、高い柔軟性を 有することにより発熱体及び放熱体に密着して効率よく発熱体から発生した熱を放熱体に伝導することができ、か つ、温度

(81) 指定国 (国内): CN, US.

添付公開書類:
- 国際調査報告書

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

が上昇しても密着した状態を保つことができる放熱用部材、及び、該放熱用部材により発熱体と放熱体とを接続してなる接続構造体を提供することを目的とする。 本発明は、熱可塑性樹脂と熱伝導性微粒子とを含有し、40~80℃に融解温度を有する化合物を含有しない熱可塑性樹脂組成物からなる放熱用部材であって、23℃においては、〇. 1 H z 時の貯蔵弾性率が5万P a 以上であり、かつ、定形を保持しており、50~80℃においては、〇. 1 H z 時の貯蔵弾性率が400~5万P a であり、かつ、不定形であり、100℃においては、〇. 1 H z 時の貯蔵弾性率が500P a 以下であり、かつ、不定形である放熱用部材である。

WO 2004/015768

1

明細書

放熱用部材及び接続構造体

技術分野

本発明は、常温においては優れた取り扱い性を有し、発熱体と放熱体との間に 介在し、高い柔軟性を有することにより発熱体及び放熱体に密着して効率よく発 熱体から発生した熱を放熱体に伝導することができ、かつ、温度が上昇しても密 着した状態を保つことができる放熱用部材、及び、該放熱用部材により発熱体と 放熱体とを接続してなる接続構造体に関する。

10

15

20

25

5

背景技術

電気・電子部品等の発熱体と放熱体の間に介在させ、発熱体から発生する熱を 放散させる目的で、放熱シート等の放熱用部材が利用されている。しかし、電気 ・電子部品に限らず、多くの発熱体や放熱体の表面は平滑でないため放熱用部材 が発熱体及び放熱体に密着できず、発熱体や放熱体と放熱用部材との間の接触面 積が減少すると、発熱体から放熱体への熱伝達効率が低下し、放熱用部材が有す る放熱性能が充分に発揮できない。

発熱体と放熱体の間の熱的な抵抗は熱抵抗と呼ばれ、熱抵抗が小さいほど、発熱体から放熱体への熱伝達が優れ、高い放熱効果が得られる。そのため熱抵抗を小さくするためには、放熱用部材に対して優れた柔軟性が要求されている。そこで、従来は、放熱用部材として熱伝導性徴粒子を含有した放熱グリース;シリコンゴムやアクリル酸エステル系樹脂等の柔軟かつ復元力のある樹脂に熱伝導性徴粒子を分散させた放熱シート等が用いられていた。

放熱グリースとしては、例えば、特公平6-39591号公報に、シリコンオイルをベースとし、亜鉛華、アルミナ、窒化アルミニウム等の熱伝導性徴粒子を含有させたものが開示されている。このような放熱グリースは流動性のある粘稠な物質であるため、発熱体と放熱体の間に介在させた際に大きな接触面積が得られることから優れた熱抵抗性能を発現可能である。しかしながら、発熱体や放熱体に塗布させる際に、周辺部位の汚れなどが生じて作業性が低いことや、作業の

WO 2004/015768 PCT/JP2003/010112

2

ばらつきが生じて熱抵抗性能が変化する可能性が高い等の問題があった。

放熱シートとしては、例えば、特開平6-88061号公報に、アクリル酸エステル系樹脂に熱伝導性徴粒子をランダムに分散させた熱伝導テープが開示されている。このような放熱シートは定形のシートであるため、発熱体や放熱体に容易に貼り付けることができ、発熱体と放熱体の間に介在させる際に一定の間隙にすることができるため、安定した熱抵抗性能を発現することができる。しかしながら、流動性がないため、放熱グリースほどの高い柔軟性が得られず、高い熱抵抗性能を発現することが困難であった。

5

10

15

20

25

これに対し、特表 2 0 0 0 − 5 0 9 2 0 9 号公報には、アクリル系感圧性粘着 成分に対し、約 5 0 ~ 6 0 ℃に融解温度を有する α オレフィン系熱可塑性成分や 約 6 0 ~ 7 0 ℃の融解温度を有するパラフィン系ロウ成分等の化合物を混合した 放熱用部材が開示されている。これらの放熱用部材は、電圧を印加することで発 熱体の温度が上がり、混合している α オレフィン系熱可塑性成分やパラフィン系 ロウ成分の融解温度に達すると急激に軟化し、柔軟性が向上して熱抵抗性能が向上するというものである。

しかしながら、このような融解温度を持つ化合物は、発熱体や放熱体への貼付作業を行う23℃付近の温度では接着性のない固体であるため、これを含有するアクリル系感圧性粘着成分の粘着性が損なわれ、貼付作業性か低下する。また、発熱体の温度が上がって融解温度を超える際に、化合物がすべて融解するまでに若干の時間がかかることから、発熱体の温度がいったんは急上昇する。そして、融解温度を有する化合物が溶けて放熱用部材の柔軟性が向上し、発熱体と放熱体の間が密着して熱伝達率が向上すると発熱体の温度は急降下する。そのため短時間ではあるが、発熱体に温度負荷がかかるという問題があった。また、発熱体の間が密着して熱伝達率が向上したとしても、更に温度がかかり続けた場合には、溶融粘度の低い溶融した化合物が放熱用部材から流れ出してしまい、その結果、密着性が損なわれ熱伝達率も悪化して、発熱体の温度が上昇してしまうことがあるという問題もあった。

発明の要約

5

10

15

20

本発明の目的は、上記現状に鑑み、常温においては優れた取り扱い性を有し、発熱体と放熱体との間に介在し、高い柔軟性を有することにより発熱体及び放熱体に密着して効率よく発熱体から発生した熱を放熱体に伝導することができ、かつ、温度が上昇しても密着した状態を保つことができる放熱用部材、及び、該放熱用部材により発熱体と放熱体とを接続してなる接続構造体を提供することである。

本発明は、熱可塑性樹脂と熱伝導性微粒子とを含有し、40~80℃に融解温度を有する化合物を含有しない熱可塑性樹脂組成物からなる放熱用部材であって、23℃においては、0.1Hz時の貯蔵弾性率が5万Pa以上であり、かつ、定形を保持しており、50~80℃においては、0.1Hz時の貯蔵弾性率が400~5万Paであり、かつ、不定形であり、100℃においては、0.1Hz時の貯蔵弾性率が5000Pa以下であり、かつ、不定形である放熱用部材である。

上記熱可塑性樹脂は、スチレン系ブロック共重合体及び/又はブチルゴム系樹脂あることが好ましい。上記スチレン系ブロック共重合体は、スチレンーイソプレンのジブロック比率が50重量%以上、かつ、スチレン含有量が25重量%以下のスチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体であることがより好ましい。また、熱可塑性樹脂組成物は、23℃において固形状の芳香族熱可塑性樹脂を主成分とし、更に23℃において粘稠体であるキシレン樹脂を含有することが好ましい。

本発明の放熱用部材により発熱体と放熱体とを接続してなる接続構造体であって、上記放熱用部材は、発熱体の発熱により、上記発熱前よりも厚みが減少することが可能である接続構造体もまた、本発明の1つである。

本発明の放熱用部材により発熱体と放熱体とを接続してなる接続構造体であっ 25 て、上記放熱用部材は、発熱体が発熱したことにより、上記発熱前よりも既に厚 みが減少しているものである接続構造体もまた、本発明の1つである。

図面の簡単な説明

WO 2004/015768

4

図1は、放熱用部材の熱抵抗の測定に用いた測定装置を示す模式図である。図2は、実施例における高温流動性の評価の方法を説明する模式図である。

図中、1は冷却器を表し、2は放熱用部材を表し、3はボルトを表し、4は恒 温水槽を表し、5はアルミニウムブロックを表す。

5

10

15

20

25

発明の詳細な開示

以下に本発明を詳述する。

本発明の放熱用部材は、23 Cにおいては、0.1 H z 時の貯蔵弾性率が5 万 P a 以上であり、かつ、定形を保持している。従って、発熱体や放熱体への貼付作業を行う 23 C付近の温度では定形のシート状にして用いることができ優れた貼付作業性を示す。 23 Cにおける 0.1 H z 時の貯蔵弾性率が5 万 P a 未満であると、柔らかすぎて取り扱いにくく、貼付作業も行いにくい。

本発明の放熱用部材は、50~80℃においては、0.1Hz時の貯蔵弾性率が400~5万Paであり、かつ、不定形である。従って、電圧を印加することにより発熱体の温度が上がると放熱用部材は急速に軟化し、50℃~80℃の温度に達すると柔軟性が向上するため発熱体と放熱体に対する接触面積が向上し、優れた熱抵抗性能を発現する。50~80℃における0.1Hz時の貯蔵弾性率が400Pa未満であると、放熱用部材が柔らかくなりすぎて流れ出し発熱体及び放熱体から離れてしまい、5万Paを超えると、放熱用部材の柔軟性が低く発熱体や放熱体に密着できず、充分な熱抵抗性能が得られない。

本発明の放熱用部材は、100 Cにおいては、0.1 H z 時の貯蔵弾性率が 5 000 P a 以下であり、かつ、不定形である。100 Cにおける 0.1 H z 時の貯蔵弾性率が 5000 P a を超えると、シート状に加工することが困難である。

なお、貯蔵弾性率は、例えば、レオメトリックス社製のダイナミック・アナライザーRDAII等の動的粘弾性測定装置を用いて測定することができる。

本発明の放熱性部材では、40~80℃に融解温度を有する化合物を含有しないことから、この温度域において相転移現象が起こることがない。本発明では40℃と60℃との間に、相転移現象を伴わずにこのような急速な貯蔵弾性率の変

15

20

化が起こることから、発熱体の温度の上昇にあわせて放熱用部材がしだいに密着していき、発熱体の温度の上昇と、放熱用部材が軟化して発熱体と放熱体に対する接触面積が向上し優れた熱抵抗性能を発現するまでの間に時間の遅れが生じないため、発熱体の温度が急上昇してしまうことがなく、発熱体に温度負荷がかかることがない。また、相転移現象を伴わない熱可塑性樹脂組成物では、通常は室温や室温よりわずかに加熱しただけで柔らかくなったり、樹脂表面に粘着性が現れたりすることがあり放熱用部材として取り扱いにくいことが多いが、本発明の放熱用部材は、低温において定形を保持することができることから取り扱い性にも優れる。

10 本発明の放熱用部材では、60℃を超えると、貯蔵弾性率の減少は緩やかになり、柔らかくなりすぎて発熱体及び放熱体から離れて流れ出てしまうことがなく、 発熱体及び放熱体に密着し続け、発熱体から発生する熱を放熱体に効率よく伝え 続けることができる。

本発明の放熱用部材は、23℃における対アルミニウム接着力が0.5N/c m²以上であることが好ましい。これにより、発熱体及び放熱体に対して高い接着性を有することとなり、発熱体及び放熱体に放熱用部材を貼り付ける際の貼付作業性が向上する。

本発明の放熱用部材は、特に限定されないが、シート状に加工して用いることが好ましい。シート状にすることにより、貼付作業性が著しく向上する。

本発明の放熱用部材がシート状である場合、その厚さとしては $20\sim400\mu$ mであることが好ましい。 20μ m未満であると、取り扱い性が低下するとともに、発熱体と放熱体との間に介在させた際に、隙間を充分に埋めることが難しくなることがあり、 400μ mを超えると、熱抵抗性能が低下する傾向にある。

本発明の放熱用部材は、熱可塑性樹脂と熱伝導性微粒子とを含有する熱可塑性 25 樹脂組成物からなる。

上記熱可塑性樹脂としては、(メタ)アクリル酸エステル系共重合体;スチレンーブタジエンースチレンブロック共重合体、スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体;エチレンー酢酸ビニル樹脂、

10

20

25

ブタジエン系樹脂、イソブチレン系樹脂、オレフィン系樹脂、ウレタン系樹脂、 エポキシ系樹脂、酢酸ビニル系樹脂、スチレン系樹脂、ブチラール系樹脂、ポリ ビニルアルコール系樹脂、シリコン系樹脂;これらの変性樹脂等が挙げられる。 これらは単独で用いられてもよいし、2種類以上を併用してもよい。なかでも、 上述の貯蔵弾性率を実現できる設計が比較的容易であることから、アクリル酸エ ステル系共重合体、スチレン系プロック共重合体、ブチルゴム系樹脂が好適であ る。

ただし、上記熱可塑性樹脂としては、I C等の電子部品等の発熱体における高温側の動作限界温度付近に融点を有するものではないことが好ましい。また、ガラス転移温度を有する樹脂の場合においても、示差熱量計を用いて測定されるガラス転移温度が I C等の電子部品等の発熱体における高温側の最大適正動作温度付近にないことが好ましい。これらの樹脂の融解やガラス転移現象における潜熱吸収もまた、発熱体や放熱体と放熱用部材との間が密着するまでに時間の遅れを生じさせる原因となることがある。

15 上記熱可塑性樹脂としてアクリル酸エステル系共重合体を用いる場合には、重量平均分子量が5000~20万であるアクリル酸エステル系共重合体を用いることが好ましい。重量平均分子量がこの範囲内にあるアクリル酸エステル系共重合体を用いれば、容易に上述の貯蔵弾性率を発現することができる。

上記熱可塑性樹脂としてスチレン系ブロック共重合体を用いる場合には、スチレンーイソプレンのジブロック比率が50重量%以上、かつ、スチレン含有量が25重量%以下のスチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体を用いることが好ましい。スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体は、ジブロック比率とスチレン含有量により23~50℃における弾性率の変化を制御することができ、このような範囲を選択することにより上述の貯蔵弾性率を発現することができる。

また、上記熱可塑性樹脂としてスチレン系ブロック共重合体等の23℃において固形状の芳香族熱可塑性樹脂を用いる場合には、上記熱可塑性樹脂組成物は、 更に、23℃において粘稠体であるキシレン樹脂を含有することが好ましい。こ のようなキシレン樹脂を添加することによって、23℃と50℃との間の貯蔵弾性率の挙動においてより急激な変化が生じ、更に、50℃以上では緩やかな貯蔵弾性率の変化を実現することができる。これは、23℃において固形状の芳香族熱可塑性樹脂と23℃において粘稠体であるキシレン樹脂とを混合して使用すると、それぞれの芳香環同士の相互作用によって23℃では固形状態を保つが、温度を上昇させるとしだいに相互作用が弱まり、ある温度領域で相転移現象を伴うことなく相互作用が急激に弱まり軟化し、一方、一定の温度に達しても芳香環同士の擬似架橋的な相互作用が残存していることによりそれ以上の流動化が抑えられるためであると考えられる。また、上記キシレン樹脂は、粘着性付与剤としても働くものであることから、上記キシレン樹脂を配合することにより本発明の放熱用部材を発熱体及び放熱体に貼り付ける際の作業性が向上する。ただし、熱伝導性微粒子の配合量が増えると、種類によっては高温での弾性率が低下する傾向にあるので、本発明の放熱用部材の弾性率挙動は、熱可塑性樹脂、キシレン樹脂の種類及び配合量により適当に調整する必要がある。

5

10

20

15 上記熱可塑性樹脂組成物における上記キシレン樹脂の配合量としては、10~90体積%であることが好ましい。10体積%未満であると、放熱用部材の柔軟性が低く発熱体や放熱体に密着できず、充分な熱抵抗性能が得られないことがあり、90体積%を超えると、23℃で定形のシートを得ることが困難となることがある。

上記熱伝導性微粒子としては、例えば、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、アルミナ、アルミニウム、炭化珪素、酸化亜鉛、銅、金属水酸化物、黒鉛、酸化マグネシウム及びシリカからなる群より選択される少なくとも1種からなるものが好適である。

上記金属水酸化物としては、例えば、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウ 25 ム等が挙げられる。

上記熱伝導性微粒子は、高い配合割合で均一に上記熱可塑性樹脂と混合できるように表面処理されていることが好ましい。

上記熱可塑性樹脂組成物における上記熱伝導性微粒子の配合量としては、10

10

15

20

25

~90体積%であることが好ましい。10体積%未満であると、充分な熱伝導率が得られないことがあり、90体積%を超えると、得られる放熱用部材の対アルミニウム接着力が低下して貼付作業性が低下することがある。

上記熱可塑性樹脂組成物は、所望の弾性率と対アルミニウム接着力を損なわない範囲であれば、必要に応じて、ハロゲン系化合物、リン酸エステル系化合物、金属水酸化物、酸化チタン等の難燃材;カーボンブラック、ホワイトカーボン等の着色剤;シラン系、チタネート系カップリング剤等の粉体表面改質剤;グリセリン脂肪酸系の分散剤;ビスフェノール系、ヒンダード・フェノール系等の酸化防止剤;クロマン樹脂、テルペンフェノール樹脂、フェノール樹脂、ロジン、テルペン樹脂、脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素等の粘着付与剤等を含有してもよい。

本発明の放熱用部材の製造方法としては特に限定されず、例えば、所定量の上 記熱可塑性樹脂と熱伝導性徴粒子とを、2本ロール、3本ロール、プラストミル、 ニーダー、プラネタリーミキサー、バンバリーミキサー等を用いて混合し、それ をコーティング成形、押し出し成形、プレス成形等によって所望の厚さのシート 状に成形する方法等が挙げられる。

本発明の放熱用部材は、23℃付近の常温においては定形であり極めて取り扱い性に優れ、効率よく発熱体と放熱体とを接続した接続構造体を作製することができる。この接続構造体の発熱体の温度を上昇させると、一定温度以上になった時点で、ガラス転移現象や融解等の潜熱吸収を伴う相転移現象を伴うことなく急速に軟化して発熱体及び放熱体との接触面積が大きくなり、更にそれに伴って放熱用部材の厚みが減少して、優れた熱抵抗性能を発現することができる。しかも、このような放熱用部材の変化は急速であり、発熱体の温度が発熱体にとって負荷となる温度に達するまで上昇してしまう前に起こることから、発熱体に温度負荷がかかることがない。更に、温度が上昇した場合であっても、本発明の放熱用部材はそれ以上流動化することなく、発熱体及び放熱体に密着し続け、発熱体に温度負荷がかかることがない。

本発明の放熱用部材により発熱体と放熱体とを接続してなる接続構造体であっ

て、放熱用部材は、発熱体の発熱により、上記発熱前よりも厚みが減少すること が可能である接続構造体もまた、本発明の1つである。

また、本発明の放熱用部材により発熱体と放熱体とを接続してなる接続構造体であって、上記放熱用部材は、発熱体が発熱したことにより、上記発熱前よりも 既に厚みが減少しているものである接続構造体もまた、本発明の1つである。

発明を実施するための最良の形態

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例 のみに限定されるものではない。

10

15

20

5

(実施例1)

スチレン含量22重量%、ジブロック比率66重量%のスチレンーイソプレン ブロック共重合体20重量部、キシレン樹脂(三菱ガス化学社製、商品名「ニカ ノールKL-05」)80重量部、及び、窒化アルミニウム(トクヤマ社製、商 品名「グレードF」)140重量部をプラストミルで混合しスラリー状物を得た。 このスラリー状物において窒化アルミニウムの体積比率は30%であった。

次いで、プレス板の上に離型PETフィルムを敷き、その上に厚みが 100μ mの金属枠を載せ、金属枠内に得られたスラリー状物を流し込んだ。次いで、離型PETフィルムをその上に載せ上下からプレス板で挟み込み、室温下でプレス成形を行った。これにより、両面に離型PETフィルムが付いた厚さ 100μ mのシート状の放熱用部材を得た。

(実施例2)

スチレン含量22重量%、ジブロック比率66重量%のスチレンーイソプレン ブロック共重合体20重量部、キシレン樹脂(三菱ガス化学社製、商品名「ニカノールKL-05」)80重量部、及び、窒化アルミニウム(トクヤマ社製、商品名「グレードF」)330重量部をプラストミルで混合しスラリー状物を得た。このスラリー状物において窒化アルミニウムの体積比率は50%であった。

このスラリー状物を用いて、実施例1と同様にして両面に離型PETフィルム

が付いた厚さ100μmのシート状の放熱用部材を得た。

(実施例3)

5

10

20

スチレン含量22重量%、ジブロック比率66重量%のスチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体20重量部、キシレン樹脂(三菱ガス化学社製、商品名「ニカノールKL-05」)40重量部、キシレン樹脂(三菱ガス化学社製、商品名「ニカノールLL」)25重量部、液状ポリイソプレン(クラレ社製、商品名「LIR30」)15重量部、及び、アルミナ(昭和電工社製、商品名「CB-A0 B-A20S」)400重量部、アルミナ(昭和電工社製、商品名「CB-A0 5S」)200重量部をプラストミルで混合し、スラリー状物を得た。このスラリー状物において窒化アルミニウムの体積比率は60%であった。

このスラリー状物を用いて、実施例1と同様にして両面に離型PETフィルムが付いた厚さ100μmのシート状の放熱用部材を得た。

15 (実施例4)

スチレン含量55重量%、ジブロック比率16重量%のスチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体10重量部、スチレン含有量22重量%、ジブロック比率66重量%のスチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体10重量部、キシレン樹脂(三菱ガス化学社製、商品名「ニカノールKL-05」)65重量部、液状ポリイソプレン(クラレ社製、商品名「LIR403」)15重量部、及び、アルミナ(昭和電工社製、商品名「CB-A20S」)400重量部、アルミナ(昭和電工社製、商品名「CB-A05S」)200重量部をプラストミルで混合し、スラリー状物を得た。このスラリー状物において窒化アルミニウムの体積比率は60%であった。

(比較例1)

PCT/JP2003/010112

スチレン含量22重量%、ジブロック比率66重量%のスチレンーイソプレン ブロック共重合体30重量部、ドデシルベンゼン70重量部、及び、窒化アルミ ニウム(トクヤマ社製、商品名「グレードF」)760重量部をプラストミルで 混合しスラリー状物を得た。このスラリー状物において窒化アルミニウムの体積 比率は70%であった。

このスラリー状物を用いて、実施例1と同様にして両面に離型PETフィルムが付いた厚さ100μmのシート状の放熱用部材を得た。

(比較例2)

5

10 スチレン含量22重量%、ジブロック比率66重量%のスチレンーイソプレン ブロック共重合体50重量部、ドデシルベンゼン50重量部、及び、窒化ホウ素 (電気化学工業社製、商品名「グレードSGP」)226重量部をプラストミル で混合しスラリー状物を得た。このスラリー状物において窒化ホウ素の体積比率 は50%であった。

15 このスラリー状物を用いて、実施例1と同様にして両面に離型PETフィルムが付いた厚さ100μmのシート状の放熱用部材を得た。

(比較例3)

スチレン含量 22 重量%、ジブロック比率 66 重量%のスチレンーイソプレン ブロック共重合体 20 重量部の代わりにアクリル酸エステル系共重合体(根上工 業社製、商品名「S-2022改2」:重量平均分子量 27万) 100 重量部を、 室化アルミニウム(トクヤマ社製、商品名「グレードF」) 140 重量部の代わりに窒化ホウ素(電気化学工業社製、商品名「グレードSGP」) 226 重量部 を用いたこと以外は実施例 1 と同様にして両面に離型 PET フィルムが付いた厚 25 さ 100 μ m のシート状の放熱用部材を得た。

(比較例4)

スチレン含量22重量%、ジブロック比率66重量%のスチレンーイソプレン

ブロック共重合体 20重量部、ドデシルベンゼン80重量部、アルミナ(昭和電工社製、商品名「CB-A20S」)400重量部、アルミナ(昭和電工社製、商品名「CB-A05S」)200重量部をプラストミルで混合しスラリー状物を得た。このスラリー状物において窒化アルミニウムの体積比率は60%であった。

このスラリー状物を用いて、実施例1と同様にして両面に離型PETフィルムが付いた厚さ 100μ mのシート状の放熱用部材を得た。

(比較例5)

スチレン含量22重量%、ジブロック比率66重量%のスチレンーイソプレンブロック共重合体22重量部、スチレン含有量30重量%、ジブロック比率30重量%のスチレンーイソプレンブロック共重合体8重量部、キシレン樹脂(三菱ガス化学社製、商品名「ニカノールKL-05」)45重量部、液状ポリイソプレン系ブロック共重合体(クラレ社製、商品名「KL230」)25重量部及び、アルミナ(昭和電工社製、商品名「CB-A20S」)400重量部、アルミナ(昭和電工社製、商品名「CB-A05S」)200重量部をプラストミルで混合しスラリー状物を得た。このスラリー状物において窒化アルミニウムの体積比率は60%であった。このスラリー状物を用いて、実施例1と同様にして両面に離型PETフィルムが付いた厚さ100μmのシート状の放熱用部材を得た。

20

25

15

5

10

(比較例6)

市販のシリコングリースであるDow Corning社製、商品名「#340」を用いた。熱抵抗の評価の際には、放熱体の上に、中央を35mm角にくり抜いた厚さ50 μ mのPETフィルムを置き、そのくり抜いた中央部にシリコングリースを流し込み、へらで余分なシリコングリースをかき落とすことにより、厚さ50 μ mのシリコングリースの層を形成した。

<評 価>

実施例1~4及び比較例1~6で得られた放熱用部材について、以下の方法により、熱抵抗、貯蔵弾性率及び高温流動性を評価した。

(熱抵抗の測定)

5 熱抵抗は、図1に示す測定装置により測定した。即ち、アルミニウム製の冷却器1の上に離型PETフィルムを剥がした放熱用部材2を貼り付け、更にその上に熱源となるICを積層し、ボルト3により締め付けトルク1N・mで締め付けた。

I Cに電源を入れて80W/hの電力を供給し、60分後に、I Cの温度T1と、冷却器1の放熱用部材の近傍温度T2を測定した。なお、冷却器1は、内部に恒温水槽4から23℃の水が供給循環されるようになっている。測定結果から熱抵抗を下記式で求めた。

熱抵抗 (℃/W) = (T1-T2) / ICへの供給電力量 = (T1-T2) / 80

15 (貯蔵弾性率の測定)

ダイナミック・アナライザーRDAII(レオメトリックス社製)を用い、0. 1 Hz の条件で、23 \mathbb{C} 、50 \mathbb{C} 、80 \mathbb{C} 及び100 \mathbb{C} における放熱用部材の貯蔵弾性率を測定した。

20 (高温流動性の評価)

図2に示したように、アルミニウムからなる正立方体のブロックの側面に片面の離型PETフィルムを剥がした放熱用部材を貼り付けた。このアルミニウムブロックを80 Cの恒温槽に保管し、1 週間経過後に放熱用部材の流れ落ちの有無を目視にて観察した。

10

表 1

10

	熱抵抗(℃/W)	貯蔵弾性率(Pa)				高温流動性
		23℃	50℃	80℃	100℃	(流れ落ち)
実施例1	0. 118	207000	2380	906	710	なし
実施例2	0. 098	487000	4560	1050	910	なし
実施例3	0. 104	87000	2570	684	655	なし
実施例4	0. 120	97000	2810	1440	362	なし
比較例1	0. 115	26200	5600	110	85	あり
比較例2	0. 135	37500	12500	200	156	あり
比較例3	0. 365	123400	56800	5900	3280	なし
比較例4	0. 092	14200	321	6	1	あり
比較例5	0. 321	1560000	266000	30500	19000	なし
比較例6	0. 090	8500	3700	4020	3990	なし

産業上の利用可能性

15 本発明によれば、常温においては優れた取り扱い性を有し、発熱体と放熱体と の間に介在し、高い柔軟性を有することにより発熱体及び放熱体に密着して効率 よく発熱体から発生した熱を放熱体に伝導することができ、かつ、温度が上昇しても密着した状態を保つことができる放熱用部材、及び、該放熱用部材により発熱体と放熱体とを接続してなる接続構造体を提供できる。

WO 2004/015768

請求の範囲

- 1. 熱可塑性樹脂と熱伝導性微粒子とを含有し、40~80℃に融解温度を有する化合物を含有しない熱可塑性樹脂組成物からなる放熱用部材であって、
- 5 23℃においては、0.1Hz時の貯蔵弾性率が5万Pa以上であり、かつ、定 形を保持しており、

50~80℃においては、0.1Hz時の貯蔵弾性率が400~5万Paであり、かつ、不定形であり、

100℃においては、0.1Hz時の貯蔵弾性率が5000Pa以下であり、か 10 つ、不定形である

ことを特徴とする放熱用部材。

2. 熱可塑性樹脂は、スチレン系ブロック共重合体及び/又はブチルゴム系樹脂 あることを特徴とする請求の範囲第1項記載の放熱用部材。

15

3. スチレン系ブロック共重合体は、スチレンーイソプレンのジブロック比率が 50重量%以上、かつ、スチレン含有量が25重量%以下のスチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体であることを特徴とする請求の範囲第2項記載の 放熱用部材。

20

- 4. 熱可塑性樹脂組成物は、23℃において固形状の芳香族熱可塑性樹脂を主成分とし、更に23℃において粘稠体であるキシレン樹脂を含有することを特徴とする請求の範囲第1、2又は3項記載の放熱用部材。
- 25 5. 請求の範囲第1、2、3又は4項記載の放熱用部材により発熱体と放熱体と を接続してなる接続構造体であって、前記放熱用部材は、発熱体の発熱により、 前記発熱前よりも厚みが減少することが可能であることを特徴とする接続構造体。
 - 6. 請求の範囲第1、2、3又は4項記載の放熱用部材により発熱体と放熱体と

WO 2004/015768 PCT/JP2003/010112

16

を接続してなる接続構造体であって、前記放熱用部材は、発熱体が発熱したことにより、前記発熱前よりも既に厚みが減少しているものであることを特徴とする接続構造体。

WO 2004/015768 PCT/JP2003/010112

1/1

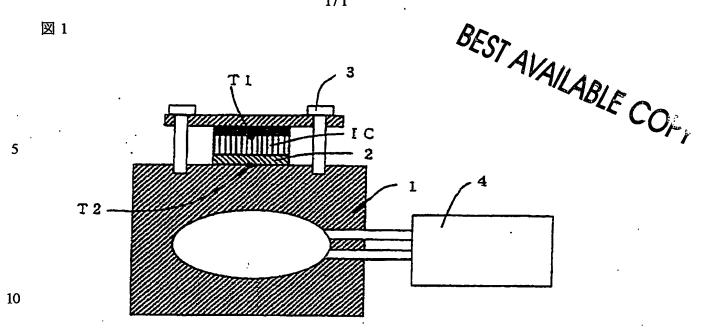
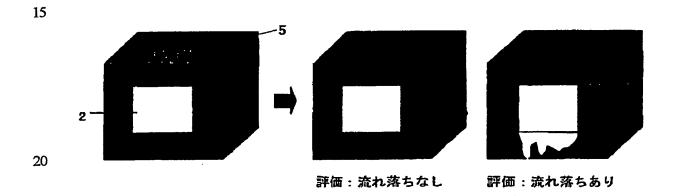


図 2



25

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP03/10112

	IFICATION OF SUBJECT MATTER C1 H01L23/373, C08K3/00, C08L	33/08, 53/00, 101/00						
	o International Patent Classification (IPC) or to both nat	tional classification and IPC						
	SEARCHED							
Int.	Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ⁷ H01L23/373, C08K3/00, C08L33/08, 53/00, 101/00							
	ion searched other than minimum documentation to the							
	Jitsuyo Shinan Koho 1922—1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994—2003 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971—2003 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996—2003							
Electronic d	ata base consulted during the international search (name	e of data base and, where practicable, sea	rch terms used)					
			·					
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT							
Category*	Citation of document, with indication, where app	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.					
А	<pre>JP 6-275748 A (Sharp Corp.), 30 September, 1994 (30.09.94) (Family: none)</pre>		1-6 .					
A	<pre>JP 2001-274302 A (JSR Corp.) 05 October, 2001 (05.10.01), (Family: none)</pre>	1-6						
A	JP 2002-270741 A (Nitto Shin 20 September, 2002 (20.09.02) (Family: none)	1-6						
Furth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.						
* Special categories of cited documents: document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other means "O" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "Date of the actual completion of the international search 18 November, 2003 (18.11.03) "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family Date of mailing of the international search report O2 December, 2003 (02.12.03)								
Name and mailing address of the ISA/		Authorized officer						
Japanese Patent Office								
Facsimile No.		Telephone No.						

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. C17 H01L23/373, C08K3/00, C08L33/08, 53/00, 101/00

調査を行った分野 В.

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. C1' H01L23/373, C08K3/00, C08L33/08, 53/00, 101/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2003年

日本国登録実用新案公報 1994-2003年

日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献					
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号			
A	JP 6-275748 A (シャープ株式会社) 1994.09.30 (ファミリーなし)	1-6			
A	JP 2001-274302 A (ジェイエスアール株式会社) 2001. 10. 05 (ファミリーなし)	1-6			
A	JP 2002-270741 A (日東シンコー株式会社) 2002.09.20 (ファミリーなし)	1-6			

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

- * 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献 (理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査報告の発送日 国際調査を完了した日 02.12.03 18.11.03 9539 特許庁審査官(権限のある職員) 4 R 国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/IP) 田中 永一 郵便番号100-8915 電話番号 03-3581-1101 内線 3469 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号